

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
11. August 2005 (11.08.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 2005/073427 A2(51) Internationale Patentklassifikation: C23C 14/06,  
14/35, B05D 7/24STRAACH, Steffen [DE/DE]; Hohe Strasse 83, 01187  
Dresden (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2004/013258

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,  
AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,  
CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES,  
FI, GB, GD, GE, GI, GM, GR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE,  
KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD,  
MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG,  
PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM,  
TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM,  
ZW.(22) Internationales Anmeldedatum:  
23. November 2004 (23.11.2004)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
10 2004 005 313.8 2. Februar 2004 (02.02.2004) DE(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Aus-  
nahme von US): FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT  
ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN  
FORSCHUNG E. V. [DE/DE]; Hansastrasse 27 c,  
80666 München (DE).(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW,  
GI, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG,  
ZM, ZW), eumisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU,  
TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK,  
EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LU, MC, NL, PL,  
PT, RO, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,  
GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, NI, SD, TD, TG).(72) Erfinder; und  
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): CHARTON,  
Christoph [DE/DE]; Zum Heiderand 26, 01328  
Dresden (DE). FAHLAND, Matthias [DE/DE];  
Berthold-Haupt-Strasse 111, 01259 Dresden (DE).  
KRUG, Mario [DE/DE]; Bruno-Dietze-Ring 44, 01844  
Neustadt/Sachsen (DE). SCHILLER, Nicolas [DE/DE];  
Fabrikstrasse 5, 01833 Stolpen, OT Helmsdorf (DE).

Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu ver-  
öffentlichen nach Erhalt des BerichtsZur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Ab-  
kürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Co-  
des and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der  
PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR THE PRODUCTION OF AN ULTRA BARRIER LAYER SYSTEM

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINES ULTRABARRIERE-SCHICHTSYSTEMS

(57) Abstract: The invention relates to a method for the production of an ultra barrier layer system by vacuum coating a substrate, said layer system comprises a stack of layers which are embodied as an alternating layer system made of smooth layers and transparent ceramic layers, comprising a smooth layer arranged between two transparent ceramic layers, which are applied by sputtering, whereby a monomer is introduced into an evacuated covering chamber during the deposition of the smooth layer, wherein a magnetron plasma is operated.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines UltrabARRIERE-Schichtsystems durch Vakuumbe-  
schichtung eines Substrates mit einem Schichtstapel, der als Wechschichtsystem aus Glättungsschichten und transparenten Kera-  
mischen Schichten ausgebildet wird, mindestens jedoch eine Glättungsschicht zwischen zwei transparenten keramischen Schichten  
umfasst, welche durch Sputtern aufgebracht werden, bei dem während der Abscheidung der Glättungsschicht ein Monomer in eine  
evakuierte Beschichtungskammer eingebracht wird, in der ein Magnetronplasma betrieben wird.

WO 2005/073427 A2

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

1

## Verfahren zur Herstellung eines Ultrabariere-Schichtsystems

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines transparenten Ultrabariere-Schichtsystems durch Vakuumbeschichtung.

5

Barriereschichten dienen der Diffusionshemmung. Sie vermindern die Permeation durch ein beschichtetes Substrat. Häufige Anwendungen finden sich dort, wo verhindert werden soll, dass bestimmte Substanzen, z. B. Lebensmittel als Verpackungsgut, mit Sauerstoff aus der Umgebung in Kontakt kommen oder Wasser mit der Umgebung austauschen können. Dabei steht in erster Linie eine oxidative Umsetzung oder Verderblichkeit der zu schützenden Substanzen im Brennpunkt des Interesses. Daneben kommt unter anderem auch der Schutz verschiedenster oxidationsgefährdeter Substanzen in Betracht, wenn diese in Schichtverbunde integriert sind. Besondere Bedeutung kommt dem Schutz dieser Substanzen zu, wenn die Verzögerung der oxidativen Umsetzung die Lebensdauer von Produkten bestimmt.

15

Barriereschichten setzen verschiedenen diffundierenden Substanzen teilweise einen sehr unterschiedlichen Widerstand entgegen. Zur Charakterisierung von Barriereschichten wird häufig die Permeation von Sauerstoff (OTR) und Wasserdampf (WVTR) unter definierten Bedingungen durch die mit der Barriereschicht versehenen Substrate herangezogen. Barriereschichten haben außerdem oft die Aufgabe einer elektrischen Isolationsschicht. Ein wichtiges Einsatzgebiet von Barriereschichten stellen Display-Anwendungen dar.

20

Durch Beschichtung mit einer Barrierschicht wird die Permeation durch ein beschichtetes Substrat um einen Faktor verringert, der im einstelligen Bereich liegen oder viele Größenordnungen betragen kann. Unter Ultrabariere-Schichten werden im Sinne der Erfindung Schichten verstanden, deren Barrierewirkung verhindert, dass Permeationswerte von  $WVTR = 0,05 \text{ g/m}^2\text{d}$  und  $OTR = 0,2 \text{ cm}^3/\text{m}^2\text{d}$  überschritten werden ( $WVTR$  gemäß DIN 53122-2-A;  $OTR$  gemäß DIN 53380-3).

25

30

Häufig werden außer vorgegebenen Barrierewerten verschiedene andere Zielparameter von einer fertigen Barrierschicht erwartet. Beispielhaft stehen hierfür optische, mechanische sowie technologisch-ökonomische Anforderungen. Barrierschichten sollen oftmals unsichtbar sein, müssen also im sichtbaren Spektralbereich nahezu vollständig transparent sein. Werden Barrierschichten in Schichtsystemen eingesetzt, ist es häufig vorteilhaft,

35

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

2

wenn Beschichtungsschritte zum Aufbringen einzelner Teile des Schichtsystems miteinander kombinierbar sind.

- Einem wichtigen Platz unter den Beschichtungsverfahren, die bei der Herstellung von Schichtsystemen zum Einsatz kommen, nehmen Kathodenzerstäubungsverfahren, sogenannte Sputterverfahren, ein, da diese die Abscheidung von Schichten hoher Qualität ermöglichen. Bei der Herstellung von Schichtsystemen ist es daher oft wünschenswert, Sputterverfahren zumindest in Kombination mit anderen Beschichtungsverfahren einsetzen zu können.
- Zur Herstellung von Barrierschichten werden häufig sogenannte PECVD-Verfahren (plasma enhanced chemical vapor deposition) eingesetzt. Diese kommen auf verschiedensten Substraten für unterschiedliche Schichtmaterialien zum Einsatz. Es ist beispielsweise bekannt, auf 13 µm PET-Substraten  $\text{SiO}_2$ - und  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Schichten einer Dicke von 20 bis 30 nm abzuschneiden [A. S. da Silva Sobrinho et al., J. Vac. Sci. Technol. A 16(6), Nov/Dec 1998, p. 3190-3198]. Bei einem Arbeitsdruck von 10 Pa lassen sich auf diese Weise Permeationswerte von WVTR = 0,3 g/m<sup>2</sup>d und OTR = 0,5 cm<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>d erreichen.
- Bei der Beschichtung mit  $\text{SiO}_2$  für transparente Barrierschichten auf PET Substrat mittels PECVD lässt sich eine Sauerstoffbarriere von OTR = 0,7 cm<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>d realisieren [R. J. Nelson and H. Chatham, Society of Vacuum Coaters, 34th Annual Technical Conference Proceedings (1991) p. 113-117]. Auch andere Quellen zu dieser Technologie gehen für transparente Barrierschichten auf PET-Substrat von Permeationswerten in der Größenordnung WVTR = 0,3 g/m<sup>2</sup>d und OTR = 0,5 cm<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>d aus [M. Izu, B. Dotter, S. R. Ovshinsky, Society of Vacuum Coaters, 36th Annual Technical Conference Proceedings (1993) p. 333-340].
- Nachteile der bekannten PECVD-Verfahren bestehen vor allem im Erreichen relativ geringer Barrierewirkungen. Das macht die Produkte insbesondere für Displayanwendungen uninteressant. Ein weiterer Nachteil besteht in dem hohen Arbeitsdruck, der für eine Durchführung des Verfahrens erforderlich ist. Soll ein derartiger Beschichtungsschritt in komplexe Produktionsabläufe in Vakuumanlagen integriert werden, wird unter Umständen ein hoher Aufwand für Maßnahmen der Druckentkopplung erforderlich. Insbesondere eine Kombination mit Sputterprozessen wird aus diesem Grunde zumeist unwirtschaftlich.

- Es ist bekannt, Barrierschichten durch Sputtern aufzubringen. Gesputterte Einzelschichten zeigen oft bessere Barriereigenschaften als PECVD-Schichten. Für gesputtertes Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> auf PET werden als Permeationswerte beispielsweise WVTR = 0,2 g/m<sup>2</sup>d und OTR = 1 cm<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>d angegeben [Thin Solid Films 388 (2001) 78-86]. Daneben sind zahlreiche andere Materialien
- 5 bekannt, die insbesondere durch reaktives Sputtern zur Herstellung von transparenten Barrierschichten verwendet werden. Die so hergestellten Schichten weisen jedoch für Displayanwendungen ebenfalls zu geringe Barrierewirkungen auf. Ein weiterer Nachteil derartiger Schichten liegt in ihrer geringen mechanischen Belastbarkeit. Schädigungen, die durch technologisch unvermeidbare Beanspruchungen während der Weiterverarbeitung
- 10 oder der Benutzung auftreten, führen meist zu einer deutlichen Verschlechterung der Barrierewirkung. Das macht gesputterte Einzelschichten für Barriereanwendungen häufig unbrauchbar.
- Es ist bekannt, Einzelschichten als Barrierschichten aufzudampfen. Durch dieses PVD-
- 15 Verfahren können ebenfalls verschiedene Materialien direkt oder reaktiv auf verschiedensten Substraten abgeschieden werden. Für Barriereanwendungen ist beispielsweise die reaktive Bedampfung von PET-Substraten mit Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bekannt [Surface and Coatings Technology 125 (2000) 354-360].
- Hierbei werden Permeationswerte von WVTR = 1 g/m<sup>2</sup>d und OTR = 5 cm<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>d erreicht.
- 20 Diese Werte sind ebenfalls viel zu hoch, um derart beschichtete Materialien als Barrierschichten in Displays zu verwenden. Sie sind häufig mechanisch noch weniger belastbar als gesputterte Einzelschichten. Außerdem ist eine direkte Verdampfung meist mit einer hohen Verdampfungsgeschwindigkeit oder -rate verbunden. Das bedingt bei der Herstellung von in Barriereanwendungen üblichen dünnen Schichten entsprechend hohe Substrat-
- 25 geschwindigkeiten, um eine zu starke Beaufschlagung des Substrates zu vermeiden. Eine Kombination mit Prozessschritten, die eine wesentlich geringere Durchlaufgeschwindigkeit erfordern, ist somit in Durchlaufanlagen nahezu unmöglich. Das betrifft insbesondere die Kombination mit Sputterprozessen.
- 30 Es ist bekannt, dass sich die mechanische Beständigkeit anorganischer Aufdampfschichten verbessern lässt, wenn während der Verdampfung eine organische Modifizierung vorgenommen wird. Dabei erfolgt der Einbau organischer Bestandteile in die sich während des Schichtwachstums ausbildende anorganische Matrix. Offenbar kommt es durch den Einbau dieser weiteren Bestandteile in die anorganische Matrix zu einer Erhöhung der Elastizität der
- 35 gesamten Schicht, was die Gefahr von Brüchen in der Schicht deutlich reduziert. Stell-

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

4

vertretend als zumindest für Barriereanwendungen geeignet sei in diesem Zusammenhang ein Kombinationsprozess genannt, der eine Elektronenstrahlverdampfung von  $\text{SiO}_2$  mit dem Einlass von HMDSO kombiniert (DE 195 48 160 C1). Für Displayanwendungen erforderliche niedrige Permeationsraten lassen sich mit derart hergestellten Schichten allerdings nicht erzielen. Nachteilig ist außerdem, dass die Elektronenstrahlverdampfung die bereits angesprochenen hohen Beschichtungsraten bedingt, was eine Kombination mit vielen anderen Prozessschritten deutlich erschwert.

Es ist bekannt, Barrierschichten in mehreren Beschichtungsschritten aufzubringen. Ein Verfahren bildet der sogenannte PML-Prozess (Polymer multilayer) (1999 Materials Research Society, p. 247-254); [J. D. Affinito, M. E. Gross, C. A. Coronado, G. L. Graff, E. N. Greenwell and P.M. Martin, Society of Vacuum Coaters, 39th Annual Technical Conference Proceedings (1996) p. 392-397]. Beim PML Prozess wird mittels Verdampfer ein flüssiger Acrylat-Film auf das Substrat aufgebracht, der mittels Elektronenstrahltechnik oder UV-Bestrahlung ausgehärtet wird. Dieser weist für sich keine besonders hohe Barrierewirkung auf. Anschließend erfolgt eine Beschichtung des ausgehärteten Acrylatfilms mit einer oxidischen Zwischenschicht, auf die wiederum ein Acrylatfilm aufgebracht wird. Diese Vorgehensweise wird bei Bedarf mehrfach wiederholt. Die Permeationswerte eines derart erzeugten Schichtstapels, also einer Kombination einzelner Acrylatschichten mit oxidischen Zwischenschichten, liegt unterhalb der Messgrenze von konventionellen Permeationsmessgeräten.

Nachteile bestehen vor allem im notwendigen Einsatz aufwendiger Anlagentechnik. Vakuumanlagen müssen zwingend nach dem Mehrkammerprinzip arbeiten, was mit einem hohen Preis verbunden ist. Außerdem bildet sich zunächst ein flüssiger Film auf dem Substrat, der ausgehärtet werden muss. Das führt zu einer verstärkten Anlagenverschmutzung, was Wartungszyklen verkürzt. Der Prozess ist ebenfalls für hohe Bandgeschwindigkeiten optimiert und daher in-line schlecht zu kombinieren mit langsameren Beschichtungsprozessen, insbesondere einem Sputterprozess.

Es ist weiterhin bekannt, bei der Abscheidung von Diffusionssperrschichten, also Barrierschichten, Magnetronplasmen für eine Plasmapolymersation einzusetzen (EP 0 815 283 B1); [S. Fujimaki, H. Kashiwase, Y. Kokaku, Vacuum 59 (2000) p. 657-664]. Hierbei handelt es sich um PECVD-Prozesse, die direkt durch das Plasma einer Magnetronentladung aufrechterhalten werden. Beispielhaft steht hierfür die Verwendung eines Magnetronplasmas für PECVD-Beschichtung zur Abscheidung von Schichten mit einem

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

5

Kohlenstoffgerüst, wobei als Precursor  $\text{CH}_4$  dient. Derartige Schichten weisen jedoch ebenfalls eine für Displayanwendungen ungenügende Barrierewirkung auf.

- Die Erfindung liegt die Aufgabe zu Grunde ein Verfahren zur Herstellung eines transparenten Barrierschichtsystems anzugeben, dessen Barrierewirkung ausreichend hoch ist, um die Schicht in Displayanwendungen einzusetzen, wobei das Verfahren sowohl von der Beschichtungsgeschwindigkeit als auch von den Vakuumanforderungen mit dem Magnetronputtern kompatibel, also anlagentechnisch einfach kombinierbar sein soll.
- 10 Erfindungsgemäß wird die Aufgabe durch ein Verfahren entsprechend Anspruch 1 gelöst. Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen des Verfahrens finden sich in den Ansprüchen 2 bis 27.

- Die Erfindung nutzt die Eigenschaften keramischer Barrierschichten aus. Diese zeigen über einen weiten Dickenbereich hinweg eine Abhängigkeit der Barrierewirkung von der Schichtdicke. Versuche haben gezeigt, dass bei gleicher Gesamtdicke eine dicke Einzelschicht manchmal eine deutlich geringere Barrierewirkung zeigt als mehrere dünne Teilschichten, die durch andere, weitgehend barriere neutrale Zwischenschichten voneinander getrennt sind. Der umgekehrte Fall wurde nicht beobachtet. Es wurde weiter festgestellt, dass eine dünnere Einzelschicht zwar eine geringere Barrierewirkung zeigt als eine dickere, dass die dünnere Schicht aber bei mechanischer Beanspruchung ihre Barrierewirkung erst bei viel stärkerer Beanspruchung bzw. Deformation verliert als die dickere Schicht.
- 20

- Die Barrierewirkung keramischer Schichten wird im Wesentlichen durch die Defektdichte und die Haftung der Schicht auf dem Substrat oder benachbarten Schichten bestimmt. Die teilweise hervorragende Barrierewirkung von Schichtstapeln, die mehrere dünne keramische Schichten enthalten, beruht offenbar darauf, dass Defekte in den einzelnen Schichten gegeneinander versetzt auftreten. Wo das nicht der Fall ist, erhöht sich bei gleicher Gesamtdicke der keramischen Beschichtung die Barrierewirkung eines Schichtstapels nur unwesentlich gegenüber der Barrierewirkung einer keramischen Einzelschicht.
- 30

- Das erfindungsgemäße Verfahren basiert auf der abwechselnden Abscheidung von rein keramischen Schichten durch Magnetronputtern und solchen Schichten, die mittels einem metall-organischen Precursor, der in einem Magnetronplasma umgesetzt wird, abgeschieden werden.
- 35

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

6

Das Verfahren für die Schichtabscheidung mittels metall-organischem Precursor basiert auf der Zersetzung einer dampfförmigen metall-organischen Verbindung in einem Magnetronplasma, verbunden mit der Abscheidung einer organisch modifizierten Metallverbindung. Dabei hat das Metall seinen Ursprung in der metall-organischen Verbindung, während

5 weitere Schichtkomponenten sowohl aus der metall-organischen Verbindung stammen als auch zusätzlich in Gasform eingelassen werden können.

Die rein keramischen Schichten werden durch Magnetronspütern aufgebracht. Dies kann in einem reaktiven oder nichtreaktiven Prozess geschehen.

10

Es hat sich gezeigt, dass durch die Schichtabscheidung mittels metall-organischem Precursor Zwischenschichten entstehen, die eine besonders effektive Steigerung der Barrierewirkung der keramischen Schichten bewirken. Offenbar weisen sie eine Struktur auf, die verhindert, dass sich das Wachstum von Defekten in den keramischen Schichten über mehrere Schichten hinweg fortsetzen kann. Dadurch können sich zwar in jeder einzelnen keramischen

15 Schicht neue Defekte bilden, die in manchen Fällen durch die gesamte Dicke der Einzelschicht reichen können. Das Defektwachstum endet jedoch an der Zwischenschicht. Offenbar bildet sich durch die Art und Weise der Abscheidung der Zwischenschichten, die ein PECVD-Verfahren darstellt, in den Zwischenschichten eine Struktur heraus, die von der

20 Struktur des Untergrundes nahezu unabhängig ist. Bis an eine Zwischenschicht heranreichende Defekte einer keramischen Schicht führen nicht zu Strukturveränderungen in der Zwischenschicht, die sich durch die gesamte Dicke der Zwischenschicht fortsetzen. Defekte einer im Schichtstapel befindlichen keramischen Schicht können somit nicht das Defektwachstum in einer anderen keramischen Schicht initiieren. Die Zwischenschichten führen zu

25 einer Glättung defektbehafteter Oberflächen, weshalb sie im Folgenden im Sinne der Erfindung auch als Glättungsschichten bezeichnet werden. Durch den statistisch bedingten Versatz der Defekte in den einzelnen Schichten werden Permeationswege zwischen Defekten zweier keramischer Schichten erheblich verlängert.

30

Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, dass sich durch das Aufbringen der keramischen Schichten durch Sputtern eine ausgezeichnete Haftung zwischen den einzelnen Schichten des entstehenden Schichtstapels erzielen lässt. Das führt zu einer weiteren Verbesserung der Barrierewirkung. Es lassen sich bereits durch ein Schichtsystem, das aus zwei transparenten Keramiksichten und einer Glättungsschicht

35 besteht, Permeationswerte von  $WVTR = 0,05 \text{ g/m}^2\text{d}$  und  $OTR = 0,2 \text{ cm}^3/\text{m}^2\text{d}$  erreichen. Die

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

7

Barrierewirkung lässt sich durch Variation der Anzahl der Einzelschichten auf einfache Weise an vorgegebene Mindestanforderungen anpassen. Es lassen sich sogar Permeationsraten erzielen, die unterhalb der Messgrenze konventioneller Permeationsmessgeräte liegen.

5

Es handelt sich bei der Erfindung um ein Verfahren zur Herstellung eines Ultrabariere-Schichtsystems durch Vakuumbeschichtung eines Substrates mit einem Schichtstapel, der als Wechselschichtsystem aus Glättungsschichten und transparenten keramischen Schichten ausgebildet wird, mindestens jedoch eine Glättungsschicht zwischen zwei transparenten keramischen Schichten umfasst, welche durch Sputtern aufgebracht werden, wobei während der Abscheidung der Glättungsschicht ein Monomer in eine evakuierte Beschichtungskammer eingelassen wird, in der ein Magnetronplasma betrieben wird. Die Abscheidung beider Schichttypen des Wechselschichtsystems erfolgt also im Wesentlichen jeweils unter der Einwirkung eines Magnetronplasmas. Dadurch sind beide Beschichtungsschritte sehr einfach in einer Vakuumanlage kombinierbar, da die Anforderungen an das Vakuum eine aufwendige Druckentkopplung überflüssig machen. Besonders stabil lässt sich das Verfahren betreiben, wenn sowohl für die Abscheidung der keramischen Schicht als auch zur Abscheidung der Glättungsschicht eine Magnetronanordnung aus einem oder mehreren Magnetrons in Verbindung mit einer gepulsten Energieeinspeisung (1 kHz bis 300 kHz) verwendet wird. Dies verhindert zum einen die verstärkte Ausbildung von Bogenentladungen, und zum anderen bei der Verwendung von zwei oder mehr Targets und bipolarer Energieeinspeisung die übermäßige Bedeckung der Targets mit Reaktionsprodukten aus dem Beschichtungsprozess. Besonders effektiv arbeiten auf diese Weise Doppelmagnetrons, von denen jeweils eines als Kathode und eines als Anode fungiert und deren Polarität wechselt.

25

Besonders vorteilhaft ist es, wenn zur Aufrechterhaltung des Magnetronplasmas während der Abscheidung der Glättungsschicht ein Magnetron verwendet wird, das mit einem Target bestückt ist, das aus einem Material besteht, das mit Stickstoff oder Sauerstoff reaktiv umgesetzt werden kann. Dadurch kann ein derartiges Magnetron durch Wechsel des eingelassenen Gases einerseits unter Einfluss von Reaktivgas zur Abscheidung transparenter keramischer Schichten und andererseits zur Unterstützung der Plasmapolymerisation bei Monomereinlass verwendet werden. In einer vorteilhaften Ausgestaltung des Verfahrens erfolgt die Abscheidung des Wechselschichtsystems durch wechselweisen Einfluss von HMDSO und Sauerstoff.

35



WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

8

Besonders vorteilhaft ist es, wenn die Aufrechterhaltung des Magnetronplasmas unabhängig vom Einlass der umzusetzenden Gase erfolgt. Das erreicht man durch zusätzlichen Einlass eines Arbeitsgases, vorzugsweise eines Edelgases. Besonders vorteilhaft lässt sich hierfür Argon verwenden. Als einzulassende Monomere haben sich erfindungsgemäß

- 5 Kohlenwasserstoffe, Silane, Si-Organika oder Metallorganika bewährt. Als besonders vorteilhaft hat sich der Einsatz von HMDSO erwiesen, insbesondere, wenn als transparente keramische Schichten Oxide abgeschieden werden.

- Besonders gute Resultate ergeben sich, wenn während der Abscheidung der Glättungsschicht zusätzlich zum Einlass von Monomeren Sauerstoff, Stickstoff und/oder Wasserstoff als Reaktivgas eingelassen wird. Während der Abscheidung der Glättungsschicht wird vorteilhafterweise ein Prozessdruck von 0.1 Pa bis 10 Pa eingestellt, was diesen Beschichtungsschritt problemlos mit Zerstäubungsprozessen kombinierbar macht. Deshalb ist es besonders vorteilhaft, wenn die Abscheidung der transparenten keramischen Schichten
- 10 durch Magnetronspütern, vorzugsweise reaktives Magnetronspütern, erfolgt, wobei als Reaktivgas Stickstoff, Sauerstoff und/oder Wasserstoff eingelassen wird.

Besonders vorteilhaft ist es, als transparente keramische Schicht  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  oder  $\text{SiN}$  abzuscheiden.

- 20 Die Beschichtung kann auf stationären oder bewegten bandförmigen Substraten vorgenommen werden, was das Verfahren vielseitig verwendbar macht. Besonders geeignet ist es zur Beschichtung von Kunststoffsubstraten, insbesondere, wenn die Substrattemperatur auf weniger als 200 °C gehalten wird, was z. B. über die Einstellung einer entsprechenden
- 25 Plasmaleistung problemlos möglich ist. Es lassen sich mit dem erfindungsgemäßen Verfahren bei noch niedrigerer Einstellung der Substrattemperatur auch extrem temperaturempfindliche Substrate schadungsfrei beschichten.

- Besonders wirkungsvolle Barriersysteme lassen sich erzielen, wenn die Beschichtungsrate und/oder die Substratgeschwindigkeit so eingestellt werden, dass Plasmapolymerschichten als Glättungsschichten mit einer Schichtdicke von 50 nm bis 5 µm und transparente keramische Schichten mit einer Schichtdicke von 5 nm bis 500 nm abgeschieden werden.

- Durch die gute Kombinierbarkeit der einzelnen Beschichtungsschritte ist es möglich, alle
- 35 Einzelschichten unter der Wirkung des Plasmas einer einzigen Magnetronanordnung

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

9

abzuscheiden. Das ermöglicht den Einsatz sehr kompakter Anlagen. Vorteilhaft ist hierbei, wenn während der Abscheidung des Wechselschichtsystems die eingelassenen Flüsse von Monomer und Reaktivgas und/oder Arbeitsgas allmählich verändert werden und zumindest zeitweise gleichzeitig erfolgen, so dass einzelne Schichten des Wechselschichtsystems  
5 gradientenförmig ineinander übergehen. Eine besonders einfache Ausführungsform ergibt sich, wenn Reaktivgas und Monomer über einen gemeinsamen Gaseinlass eingelassen werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren lässt sich auch mit Vorteil ausführen, wenn das Wechsel-  
10 schichtsystem mittels mindestens einer Magnetronanordnung abgeschieden wird und der Einlass von Monomer und Reaktivgas und/oder Arbeitsgas an unterschiedlichen Orten erfolgt, so dass sich bei Durchlaufen des Beschichtungsbereiches auf einem bewegten Substrat nacheinander die Schichten des Wechselschichtsystems abscheiden. Besonders vorteilhaft kann es dabei sein, wenn das Wechselschichtsystem mittels mindestens einer  
15 Magnetronanordnung abgeschieden wird und der Einlass von Monomer und Reaktivgas und/oder Arbeitsgas an unterschiedlichen Orten erfolgt, so dass sich im Bereich des Magnetronplasmas ein deutlicher Partialdruckgradient zwischen den eingelassenen Gasen ausbildet derart, dass sich bei Durchlaufen des Beschichtungsbereiches auf einem bewegten Substrat nacheinander Schichten abscheiden, die gradientenförmig ineinander übergehen.  
20 Dabei kann der Beschichtungsbereich mehrfach durchlaufen werden, um die Anzahl der Einzelschichten zu erhöhen. Auch für Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens mit gleichzeitigem Einlass von Monomer und Reaktivgas ist die Kombination von HMDSO und Sauerstoff von Vorteil. Dabei kann es zweckmäßig sein den Einlass von  
Reaktivgas und Arbeitsgas über einen gemeinsamen Gaseinlass vorzunehmen.

25 An drei Ausführungsbeispielen wird das erfindungsgemäße Verfahren näher erläutert.

In einem ersten Ausführungsbeispiel wird in einer Vakuumbeschichtungsanlage in einer Beschichtungsstation ein stationär angeordnetes Kunststoffsubstrat beschichtet. Dazu wird  
30 eine metall-organische Verbindung (HMDSO) in flüssiger Form in einem Vorratsbehälter untergebracht und über einen Flowcontroller einem Verdampfer zugeführt, wo die Flüssigkeit verdampft wird. Über eine beheizte Zuleitung und einen ebenfalls beheizten weiteren Flowcontroller wird der Dampf in den zuvor evakuierten und mit Ar bis zu einem Druck zwischen 0.1 Pa und 10 Pa gefüllten Prozessraum eingelassen. Zusätzlich können andere  
35 Reaktivgase wie Sauerstoff oder Stickstoff eingelassen werden. Alle Gase werden bevorzugt

in der unmittelbaren Nähe eines im Prozessraum gezündeten Magnetronplasmas eingelassen. Das Plasma wird von einer Doppelmagnetronanordnung erzeugt, die bipolar gepulst betrieben wird, wobei die Pulsfrequenz zwischen 1 kHz und 100 kHz liegt.

Die Targets der Magnetrons bestehen aus Aluminium.

- 5 Begonnen wird mit dem Einlass von Sauerstoff. Die Aluminiumtargets werden somit in einem Gemisch aus Argon und Sauerstoff zerstäubt, wodurch eine transparente keramische Schicht ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) in einem reaktiven Sputterprozess aufgebracht wird. Bei Erreichen einer Sollschichtdicke wird die Sputterrate reduziert und der Sauerstoffeinlass beendet. Anschließend erfolgt der Einlass von HMDSO, wodurch unter der Einwirkung des Magnetron-
- 10 plasmas eine Glättungsschicht abgeschieden wird. Ist deren Sollschichtdicke erreicht, wird der Einlass von HMDSO beendet und mit der reaktiven Aufstäubung einer Aluminiumoxid-schicht fortgefahren. Dieser Zyklus wird bei Bedarf mehrfach durchlaufen, bis sich eine geforderte Barrierewirkung erwarten lässt. Diese kann durch anschließende Messungen überprüft werden.
- 15 Bei einer derartigen stationären Beschichtung kann durch Wahl eines geeigneten Targetmaterials wie Si, Ti oder Al das Aufbringen eines Wechselschichtsystems in analoger Weise durch einfachen Wechsel der eingelassenen Gase zwischen metall-organischem Dampf und  $\text{O}_2$  oder  $\text{N}_2$  erfolgen.
- Der Vorteil dieser Variante ist, dass nur eine einzige Beschichtungsstation nötig ist, da das
- 20 Magnetronplasma einmal zur Schichtabscheidung der keramischen Schicht und einmal zur Umsetzung des metall-organischen Precursors verwendet wird.

- In einem zweiten Ausführungsbeispiel wird in einer Vakuumbeschichtungsanlage, die mit einem Abwickel und einem Aufwickel für bandförmige Substrate ausgerüstet ist, in
- 25 mindestens einer Beschichtungsstation ein kontinuierlich bewegtes Kunststoffsubstrat beschichtet. Dazu wird eine metall-organische Verbindung (HMDSO) in flüssiger Form in einem Vorratsbehälter untergebracht und über einen Flowcontroller einem Verdampfer zugeführt, wo die Flüssigkeit verdampft wird. Über eine beheizte Zuleitung und einen ebenfalls beheizten weiteren Flowcontroller wird der Dampf in den zuvor evakuierten und
- 30 mit Ar bis zu einem Druck zwischen 0.1 Pa und 10 Pa gefüllten Prozessraum eingelassen. Zusätzlich können andere Reaktivgase wie Sauerstoff oder Stickstoff eingelassen werden. Alle Gase werden bevorzugt in der unmittelbaren Nähe eines im Prozessraum gezündeten Magnetronplasmas eingelassen. Das Plasma wird von einer Doppelmagnetronanordnung erzeugt, die bipolar gepulst betrieben wird, wobei die Pulsfrequenz zwischen 1 kHz und
- 35 100 kHz liegt. Die Targets der Magnetrons bestehen aus Aluminium.

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

11

Die Vakuumbeschichtungsanlage wird mit nur einer Beschichtungsstation betrieben. Es wird zunächst mit dem Einlass von Sauerstoff begonnen. Die Aluminiumtargets werden in einem Gemisch aus Argon und Sauerstoff zerstäubt, wodurch eine transparente keramische Schicht ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) in einem reaktiven Sputterprozess aufgebracht wird. Die Schichtdicke der transparenten keramischen Schicht kann über die Vorschubgeschwindigkeit des bandförmigen Substrates und über die dem Sputterprozess zugeführte elektrische Leistung eingestellt werden. Ist die gewünschte Länge des bandförmigen Substrates beschichtet, wird der Beschichtungsprozess unterbrochen und die Bandlaufrichtung umgekehrt. Danach erfolgt der Einlass von HMDSO, wodurch unter Einwirkung des Magnetronplasmas eine Glättungsschicht bei umgekehrter Bandlaufrichtung abgeschieden wird.

Dieser Zyklus wird bei Bedarf mehrfach mit wechselnder Bandlaufrichtung durchlaufen, bis sich eine geforderte Barrierewirkung erwarten lässt. Diese kann durch anschließende Messungen überprüft werden. Auf diese Weise lassen sich in einer einzigen Beschichtungsstation Schichtstapel aus beliebig vielen Einzelschichten auf langgestreckten Substraten herstellen.

In einem dritten Ausführungsbeispiel wird in einer Vakuumbeschichtungsanlage, die mit einem Abwickel und einem Aufwickel für bandförmige Substrate ausgerüstet ist, in mehreren Beschichtungsstationen ein kontinuierlich bewegtes Kunststoffsubstrat beschichtet.

Dabei wird das Substrat nacheinander an benachbarten Beschichtungsstationen vorbei geführt, die entsprechend den vorangegangenen Beispielen entweder für einen reaktiven Sputterprozess zur Abscheidung von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  oder für eine plasmagestützte Abscheidung einer erfindungsgemäßen Glättungsschicht unter Einlass von HMDSO eingerichtet sind. Entspricht die Zahl der Beschichtungsstationen der Zahl der gewünschten Einzelschichten im herzustellenden Barrierschichtsystem, kann dieses in einem einzigen Durchlauf durch die Beschichtungsanlage aufgebracht werden. Daraus resultiert eine besonders hohe Effektivität derartiger Anlagen.

In allen drei Ausführungsbeispielen wird durch den Betrieb der Magnetrons mit einer gepulsten Energieeinspeisung zum einen die verstärkte Ausbildung von Bogenentladungen verhindert, zum anderen wird durch Verwendung von zwei Targets und bipolarer Energieeinspeisung die übermäßige Bedeckung der Targets mit Reaktionsprodukten aus dem Beschichtungsprozess verringert, was für eine stabile Prozessführung sorgt.

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

12

**Patentansprüche**

1. Verfahren zur Herstellung eines Ultrabarriere-Schichtsystems durch Vakuum-  
beschichtung eines Substrates mit einem Schichtstapel, der als Wechschichtsystem  
5 aus Glättungsschichten und transparenten keramischen Schichten ausgebildet wird,  
mindestens jedoch eine Glättungsschicht zwischen zwei transparenten keramischen  
Schichten umfasst, welche durch Sputtern aufgebracht werden, **dadurch gekennzeichnet**,  
dass während der Abscheidung der Glättungsschicht ein Monomer in eine  
evakuierte Beschichtungskammer eingelassen wird, in der ein Magnetronplasma  
10 betrieben wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Magnetronplasma  
während der Abscheidung der Glättungsschicht gepulst mit einer Pulsfrequenz von  
1 kHz bis 300 kHz betrieben wird.
- 15 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass zur Aufrecht-  
erhaltung des Magnetronplasmas während der Abscheidung der Glättungsschicht ein  
Magnetron verwendet wird, das mit einem Target bestückt ist, das aus einem  
Material besteht, das mit Stickstoff oder Sauerstoff reaktiv umgesetzt werden kann.
- 20 4. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**,  
dass zur Aufrechterhaltung des Plasmas während der Abscheidung der Glättungs-  
schicht ein Doppelmagnetron verwendet wird.
- 25 5. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**,  
dass als Arbeitgas ein Edelgas verwendet wird.
6. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**,  
dass als Monomer Kohlenwasserstoffe, Silane, Si-Organika oder Metallorganika ein-  
30 gelassen werden.
7. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**,  
dass während der Abscheidung der Glättungsschicht zusätzlich zum Einlass von

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

13

Monomeren Sauerstoff, Stickstoff und/oder Wasserstoff als Reaktivgas eingelassen wird.

8. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet**,  
5 dass während der Abscheidung der Glättungsschicht ein Prozessdruck von 0,1 Pa bis 10 Pa eingestellt wird.
9. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet**,  
10 dass die Abscheidung der transparenten keramischen Schichten durch Magnetron-sputtern erfolgt.
10. Verfahren nach Anspruch 9, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Abscheidung der transparenten keramischen Schichten durch reaktives Magnetronsputtern erfolgt, wobei als Reaktivgas Stickstoff, Sauerstoff und/oder Wasserstoff eingelassen wird.  
15
11. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**, dass als transparente keramische Schicht  $Al_2O_3$  abgeschieden wird.
12. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**, dass als transparente keramische Schicht  $SiO_2$  abgeschieden wird.  
20
13. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**, dass als transparente keramische Schicht  $SiN$  abgeschieden wird.
- 25 14. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Beschichtung auf stationären Substraten vorgenommen wird.
15. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Beschichtung auf bewegten bandförmigen Substraten vorgenommen wird.  
30
16. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 15, **dadurch gekennzeichnet**, dass während der Beschichtung die Substrattemperatur unter 200 °C gehalten wird.

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

14

17. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 16, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Beschichtung auf Kunststoffsubstraten vorgenommen wird.
18. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 17, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Beschichtungsrate und/oder die Substratgeschwindigkeit so eingestellt werden, dass Plasmapolymerschichten als Glättungsschichten mit einer Schichtdicke von 50 nm bis 5 µm und transparente keramische Schichten mit einer Schichtdicke von 5 nm bis 500 nm abgeschieden werden.
19. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 18, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Wechselschichtsystem mittels einer Magnetronanordnung abgeschieden wird, in deren Plasma wechselweise ein Monomer und ein Reaktivgas eingelassen wird.
20. Verfahren nach Anspruch 19, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Abscheidung des Wechselschichtsystems durch wechselweisen Einlass von HMDSO und Sauerstoff vorgenommen wird.
21. Verfahren nach Anspruch 19 oder 20, **dadurch gekennzeichnet**, dass während der Abscheidung des Wechselschichtsystems die eingelassenen Flüsse von Monomer und Reaktivgas und/oder Arbeitsgas allmählich verändert werden und zumindest zeitweise gleichzeitig erfolgen, so dass einzelne Schichten des Wechselschichtsystems gradientenförmig ineinander übergehen.
22. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 19 bis 21, **dadurch gekennzeichnet**, dass Reaktivgas und Monomer über einen gemeinsamen Gaseinlass eingelassen werden.
23. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 18, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Wechselschichtsystem mittels mindestens einer Magnetronanordnung abgeschieden wird und der Einlass von Monomer und Reaktivgas und/oder Arbeitsgas an unterschiedlichen Orten erfolgt, so dass sich bei Durchlaufen des Beschichtungsbereiches auf einem bewegten Substrat nacheinander die Schichten des Wechselschichtsystems abscheiden.

WO 2005/073427

PCT/EP2004/013258

15

24. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 18, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Wechselschichtsystem mittels mindestens einer Magnetronanordnung abgeschieden wird und der Einlass von Monomer und Reaktivgas und/oder Arbeitgas an unterschiedlichen Orten erfolgt, so dass sich im Bereich des Magnetronplasmas ein deutlicher Partialdruckgradient zwischen den eingelassenen Gasen ausbildet derart, dass sich bei Durchlaufen des Beschichtungsbereiches auf einem bewegten Substrat nacheinander Schichten abscheiden, die gradientenförmig ineinander übergehen.
25. Verfahren nach Anspruch 23 oder 24, **dadurch gekennzeichnet**, dass ein bewegtes Substrat mehrmals durch den Beschichtungsbereich geführt wird.
26. Verfahren nach einem der Ansprüche 23 bis 25, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Abscheidung des Wechselschichtsystems durch gleichzeitigen Einlass von HMDSO und Sauerstoff vorgenommen wird.
27. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 23 bis 26, **dadurch gekennzeichnet**, dass Reaktivgas und Arbeitgas über einen gemeinsamen Gaseinlass eingelassen werden.

20



## PCT

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 03 F43485-FEP	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/ISA/220 sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/013258	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 23/11/2004	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 02/02/2004
Anmelder  FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER . . . . .		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 4 Blätter.



Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

## 1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der Sprache ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.



Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. ☐ Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz siehe Feld Nr. 1.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld II).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld III).

## 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

## 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld Nr. IV angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

## 6. Hinsichtlich der Zeichnungen

- a. Ist folgende Abbildung der Zeichnungen mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. \_\_\_\_\_



wie vom Anmelder vorgeschlagen



wie von der Behörde ausgewählt, weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.



wie von der Behörde ausgewählt, weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

- b. ☐ wird keine der Abbildungen mit der Zusammenfassung veröffentlicht.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
 IPK 7 C23C14/06 C23C14/35 B05D7/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
 IPK 7 C23C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, INSPIC, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	BURROWS P E ET AL: "Ultra barrier flexible substrates for flat panel displays" DISPLAYS ELSEVIER UK, Bd. 22, Nr. 2, Mai 2001 (2001-05), Seiten 65-69, XP002342349 ISSN: 0141-9382 Seite 67, Absatz 2 - Seite 68, Absatz 2	1-27
A	AFFINITO J D: "HYBRIDIZATION OF THE POLYMER MULTI-LAYER (PML) DEPOSITION PROCESS" SURFACE AND COATINGS TECHNOLOGY, ELSEVIER, AMSTERDAM, NL, Bd. 133/134, November 2000 (2000-11), Seiten 528-534, XP001058306 ISSN: 0257-8972 das ganze Dokument	1-27

<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen		<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie	
<p>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</p> <p>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>"E" ältestes Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p>		<p>"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Vorverständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>"S" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p>	
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des Internationalen Recherchenberichts	
26. August 2005		07/09/2005	
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5816 Patentaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bodienstoter  Patterson, A	

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 815 283 B (EMPA Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt; Eidgenö) 19. Juni 2002 (2002-06-19) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1-9 -----	1-27

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0815283	B	07-01-1998	AT 219528 T 15-07-2002
		AU 4936196 A 02-10-1996	
		DE 59609370 D1 25-07-2002	
		EP 0815283 A1 07-01-1998	
		WO 9628587 A1 19-09-1996	
-----			

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

**PCT**

An  
FRAUNHOFER-PATENTSTELLE FÜR  
DIE DEUTSCHE FORSCHUNG  
Leonrodstrasse 68  
D-80636 München  
GERMANY

**EINGEGANGEN**

12. Sep. 2005

Erl. ....

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERMITTLUNG DES  
INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS  
UND DES SCHRIFTLICHEN BESCHIEDS DER  
INTERNATIONALEN RECHERCHENBEHÖRDE  
ODER DER ERKLÄRUNG

(Regel 44.1 PCT)


Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 03F43485-FEP	Absenddatum (Tag/Monat/Jahr) 07/09/2005
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/013258	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 23/11/2004
Anmelder FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER . . . .	

1. ☒ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß der internationale Recherchenbericht und der schriftliche Bescheid der Internationalen Recherchenbehörde erstellt wurden und ihm hiermit übermittelt werden.  
**Einreichung von Änderungen und einer Erklärung nach Artikel 19:**  
 Der Anmelder kann auf eigenen Wunsch die Ansprüche der internationalen Anmeldung ändern (siehe Regel 46):  
**Bis wann sind Änderungen einzureichen?**  
 Die Frist zur Einreichung solcher Änderungen beträgt üblicherweise zwei Monate ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts.  
**Wo sind Änderungen einzureichen?**  
 Unmittelbar beim Internationalen Büro der WIPO, 4, chemin des Colombettes, CH-1211 Genf 20, Telefaxnr.: (41-22) 740.14.35  
**Nähere Hinweise** sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

2. ☐ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß kein internationaler Recherchenbericht erstellt wird und daß ihm hiermit die Erklärung nach Artikel 17 (2) a) sowie der schriftliche Bescheid der Internationalen Recherchenbehörde übermittelt werden.

3. ☐ Hinsichtlich des Widerspruchs gegen die Einrichtung einer zusätzlichen Gebühr (zusätzlicher Gebühren) nach Regel 40.2 wird dem Anmelder mitgeteilt, daß  
☐ der Widerspruch und die Entscheidung hierüber zusammen mit seinem Antrag auf Übermittlung des Wortlauts sowohl des Widerspruchs als auch der Entscheidung hierüber an die Bestimmungsorte dem Internationalen Büro übermittelt worden sind.  
☐ noch keine Entscheidung über den Widerspruch vorliegt; der Anmelder wird benachrichtigt, sobald eine Entscheidung getroffen wurde.

4. **Zur Erinnerung:**  
 Kurz nach Ablauf von 18 Monaten seit dem Prioritätsdatum wird die internationale Anmeldung vom Internationalen Büro veröffentlicht. Will der Anmelder die Veröffentlichung verhindern oder auf einen späteren Zeitpunkt verschieben, so muß gemäß Regel 90<sup>ter</sup> 1 bzw. 90<sup>ter</sup> 3 vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung eine Erklärung über die Zurücknahme der internationalen Anmeldung oder des Prioritätsanspruchs beim Internationalen Büro eingehen.  
 Der Anmelder kann beim Internationalen Büro eine informelle Stellungnahme zum schriftlichen Bescheid der Internationalen Recherchenbehörde einreichen. Das Internationale Büro sendet allen Bestimmungsorten eine Kopie dieser Stellungnahme, sofern nicht ein internationaler vorläufiger Prüfungsbericht erstellt worden ist bzw. gerade erstellt wird. Eine solche Stellungnahme würde auch der Öffentlichkeit zugänglich gemacht, allerdings erst nach Ablauf von 30 Monaten seit dem Prioritätsdatum.  
 In bezug auf die Bestimmungsorte ist innerhalb von 18 Monaten seit dem Prioritätsdatum ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung einzureichen, wenn der Anmelder den Eintritt in die nationale Phase verschieben und erst 30 Monaten nach dem Prioritätsdatum (in manchen Ämtern sogar noch später) vornehmen möchte; ansonsten muß der Anmelder innerhalb von 20 Monaten seit dem Prioritätsdatum die für den Eintritt in die nationale Phase vor diesen Bestimmungsorten vorgeschriebenen Handlungen vornehmen.  
 Bei anderen Bestimmungsorten gilt die Frist von 30 Monaten (oder eine etwaige längere Frist) auch dann, wenn innerhalb von 18 Monaten kein solcher Antrag eingereicht wird.  
 Siehe Anhang zu Formblatt PCT/IB/301. Genaue Angaben zu den jeweils geltenden Fristen in den einzelnen Ämtern enthält der PCT-Leitfaden für Anmelder, Band II, Nationale Kapitel sowie die Website der WIPO.

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk Tel.: (+31-70) 340-2040 Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Trudy Thoen-de Jong
---	--

Diese Anmerkungen sollen grundlegende Hinweise zur Einreichung von Änderungen gemäß Artikel 19 geben. Diesen Anmerkungen liegen die Erfordernisse des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens (PCT), der Ausführungsordnung und der Verwaltungsrichtlinien zu diesem Vertrag zugrunde. Bei Abweichungen zwischen diesen Anmerkungen und obengenannten Texten sind letztere maßgebend. Nähere Einzelheiten sind dem PCT-Leitfaden für Anmelder, einer Veröffentlichung der WIPO, zu entnehmen.  
Die in diesen Anmerkungen verwendeten Begriffe "Artikel", "Regel" und "Abschnitt" beziehen sich jeweils auf die Bestimmungen des PCT-Vertrags, der PCT-Ausführungsordnung bzw. der PCT-Verwaltungsrichtlinien.

## HINWEISE ZU ÄNDERUNGEN GEMÄSS ARTIKEL 19

Nach Erhalt des internationalen Recherchenberichts hat der Anmelder die Möglichkeit, einmal die Ansprüche der internationalen Anmeldung zu ändern. Es ist jedoch zu betonen, daß, da alle Teile der internationalen Anmeldung (Ansprüche, Beschreibung und Zeichnungen) während des internationalen vorläufigen Prüfungsverfahrens geändert werden können, normalerweise keine Notwendigkeit besteht, Änderungen der Ansprüche nach Artikel 19 einzureichen, außer wenn der Anmelder z.B. zum Zwecke eines vorläufigen Schutzes die Veröffentlichung dieser Ansprüche wünscht oder ein anderer Grund für eine Änderung der Ansprüche vor ihrer internationalen Veröffentlichung vorliegt. Weiterhin ist zu beachten, daß ein vorläufiger Schutz nur in einigen Staaten erhältlich ist.

### Welche Teile der internationalen Anmeldung können geändert werden?

Im Rahmen von Artikel 19 können nur die Ansprüche geändert werden.

In der internationalen Phase können die Ansprüche auch nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert (oder nochmals geändert) werden. Die Beschreibung und die Zeichnungen können nur nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert werden.

Beim Eintritt in die nationale Phase können alle Teile der internationalen Anmeldung nach Artikel 28 oder gegebenenfalls Artikel 41 geändert werden.

### Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Innerhalb von zwei Monaten ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts oder innerhalb von sechzehn Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft. Die Änderungen gelten jedoch als rechtzeitig eingereicht, wenn sie dem Internationalen Büro nach Ablauf der maßgebenden Frist, aber noch vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung (Regel 46.1) zugehen.

### Wo sind die Änderungen nicht einzureichen?

Die Änderungen können nur beim Internationalen Büro, nicht aber beim Anmeldeamt oder der Internationalen Recherchenbehörde eingereicht werden (Regel 46.2).

Falls ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung eingereicht wurde/wird, siehe unten.

### In welcher Form können Änderungen erfolgen?

Eine Änderung kann erfolgen durch Streichung eines oder mehrerer ganzer Ansprüche, durch Hinzufügen eines oder mehrerer neuer Ansprüche oder durch Änderung des Wortlauts eines oder mehrerer Ansprüche in der eingereichten Fassung.

Für jedes Anspruchsblatt, das sich aufgrund einer oder mehrerer Änderungen von dem ursprünglich eingereichten Blatt unterscheidet, ist ein Ersatzblatt einzureichen.

Alle Ansprüche, die auf einem Ersatzblatt erscheinen, sind mit arabischen Ziffern zu nummerieren. Wird ein Anspruch gestrichen, so brauchen, die anderen Ansprüche nicht neu nummeriert zu werden. Im Fall einer Neunummerierung sind die Ansprüche fortlaufend zu nummerieren (Verwaltungsrichtlinien, Abschnitt 205 b)).

Die Änderungen sind in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

### Welche Unterlagen sind den Änderungen beizufügen?

Begleitschreiben (Abschnitt 205 b)):

Die Änderungen sind mit einem Begleitschreiben einzureichen.

Das Begleitschreiben wird nicht zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht. Es ist nicht zu verwechseln mit der "Erklärung nach Artikel 19(1)" (siehe unten, "Erklärung nach Artikel 19(1)").

Das Begleitschreiben ist nach Wahl des Anmelders in englischer oder französischer Sprache abzufassen. Bei englischsprachigen internationalen Anmeldungen ist das Begleitschreiben aber ebenfalls in englischer, bei französischsprachigen internationalen Anmeldungen in französischer Sprache abzufassen.

Im Begleitschreiben sind die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen anzugeben. So ist insbesondere zu jedem Anspruch in der internationalen Anmeldung anzugeben (gleichlautende Angaben zu verschiedenen Ansprüchen können zusammengefaßt werden), ob

- i) der Anspruch unverändert ist;
- ii) der Anspruch gestrichen worden ist;
- iii) der Anspruch neu ist;
- iv) der Anspruch einen oder mehrere Ansprüche in der eingereichten Fassung ersetzt;
- v) der Anspruch auf die Teilung eines Anspruchs in der eingereichten Fassung zurückzuführen ist.

Im folgenden sind Beispiele angegeben, wie Änderungen im Begleitschreiben zu erläutern sind:

1. [Wenn anstelle von ursprünglich 48 Ansprüchen nach der Änderung einiger Ansprüche 51 Ansprüche existieren:]  
"Die Ansprüche 1 bis 29, 31, 32, 34, 35, 37 bis 48 werden durch geänderte Ansprüche gleicher Numerierung ersetzt; Ansprüche 30, 33 und 36 unverändert; neue Ansprüche 49 bis 51 hinzugefügt."
2. [Wenn anstelle von ursprünglich 15 Ansprüchen nach der Änderung aller Ansprüche 11 Ansprüche existieren:]  
"Geänderte Ansprüche 1 bis 11 treten an die Stelle der Ansprüche 1 bis 15."
3. [Wenn ursprünglich 14 Ansprüche existierten und die Änderungen darin bestehen, daß einige Ansprüche gestrichen werden und neue Ansprüche hinzugefügt werden:]  
"Ansprüche 1 bis 6 und 14 unverändert; Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt. Oder: "Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt; alle übrigen Ansprüche unverändert."
4. [Wenn verschiedene Arten von Änderungen durchgeführt werden:]  
"Ansprüche 1-10 unverändert; Ansprüche 11 bis 13, 18 und 19 gestrichen; Ansprüche 14, 15 und 16 durch geänderten Anspruch 14 ersetzt; Anspruch 17 in geänderte Ansprüche 15, 16 und 17 unterteilt; neue Ansprüche 20 und 21 hinzugefügt."

## "Erklärung nach Artikel 19(1)" (Regel 46.4)

Den Änderungen kann eine Erklärung beigelegt werden, mit der die Änderungen erläutert und ihre Auswirkungen auf die Beschreibung und die Zeichnungen dargelegt werden (die nicht nach Artikel 19 (1) geändert werden können).

Die Erklärung wird zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht.

Sie ist in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Sie muß kurz gehalten sein und darf, wenn in englischer Sprache abgefaßt oder ins Englische übersetzt, nicht mehr als 500 Wörter umfassen.

Die Erklärung ist nicht zu verwechseln mit dem Begleitschreiben, das auf die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen hinweist, und ersetzt letzteres nicht. Sie ist auf einem gesonderten Blatt einzureichen und in der Überschrift als solche zu kennzeichnen, vorzugsweise mit den Worten "Erklärung nach Artikel 19 (1)".

Die Erklärung darf keine herabsetzenden Äußerungen über den internationalen Recherchenbericht oder die Bedeutung von in dem Bericht aufgeführten Veröffentlichungen enthalten. Sie darf auf im internationalen Recherchenbericht angeführte Veröffentlichungen, die sich auf einen bestimmten Anspruch beziehen, nur im Zusammenhang mit einer Änderung dieses Anspruchs Bezug nehmen.

## Auswirkungen eines bereits gestellten Antrags auf internationale vorläufige Prüfung

Ist zum Zeitpunkt der Einreichung von Änderungen nach Artikel 19 bereits ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt worden, so sollte der Anmelder in seinem Interesse gleichzeitig mit der Einreichung der Änderungen beim Internationalen Büro auch eine Kopie der Änderungen bei der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde einreichen (siehe Regel 62.2 a), erster Satz).

## Auswirkungen von Änderungen hinsichtlich der Übersetzung der internationalen Anmeldung beim Eintritt in die nationale Phase

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß bei Eintritt in die nationale Phase möglicherweise anstatt oder zusätzlich zu der Übersetzung der Ansprüche in der eingereichten Fassung eine Übersetzung der nach Artikel 19 geänderten Ansprüche an die bestimmten/ausgewählten Ämter zu übermitteln ist.

Nähere Einzelheiten über die Erfordernisse jedes bestimmten/ausgewählten Amtes sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

An:

siehe Formular PCT/ISA/220

# PCT

**SCHRIFTLICHER BESCHIED DER  
INTERNATIONALEN  
RECHERCHENBEHÖRDE**  
(Regel 43bis.1 PCT)

Absenddatum  
(Tag/Monat/Jahr) siehe Formular PCT/ISA/210 (Blatt 2)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts  
siehe Formular PCT/ISA/220

**WEITERES VORGEHEN**  
siehe Punkt 2 unten

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/013258

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)  
23.11.2004

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)  
02.02.2004

Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK  
C23C14/06, C23C14/35, B05D7/24

Anmelder  
FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER .....

## 1. Dieser Bescheid enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- ☒ Feld Nr. I Grundlage des Bescheids
- ☐ Feld Nr. II Priorität
- ☐ Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- ☐ Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- ☒ Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Regel 43bis.1(a)(i) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- ☐ Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen
- ☐ Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- ☐ Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

## 2. WEITERES VORGEHEN

Wird ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt, so gilt dieser Bescheid als schriftlicher Bescheid der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde ("IPEA"); dies trifft nicht zu, wenn der Anmelder eine andere Behörde als diese als IPEA wählt und die gewählte IPEA dem Internationale Büro nach Regel 66.1bis b) mitgeteilt hat, daß schriftliche Bescheide dieser Internationalen Recherchenbehörde nicht anerkannt werden.

Wenn dieser Bescheid wie oben vorgesehen als schriftlicher Bescheid der IPEA gilt, so ist der Anmelder aufgefordert, bei der IPEA vor Ablauf von 3 Monaten ab dem Tag, an dem das Formblatt PCT/ISA/220 abgesandt wurde oder vor Ablauf von 22 Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft, eine schriftliche Stellungnahme und, wo dies angebracht ist, Änderungen einzureichen.

Weitere Optionen siehe Formblatt PCT/ISA/220.

## 3. Nähere Einzelheiten siehe die Anmerkungen zu Formblatt PCT/ISA/220.

Name und Postanschrift der mit der internationalen  
Recherchenbehörde



Europäisches Patentamt - P.B. 5318 Patentlaan 2  
NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas  
Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl  
Fax: +31 70 340 - 3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Patterson, A

Tel. +31 70 340-3421





---

**Feld Nr. 1 Grundlage des Bescheids**

---

1. Hinsichtlich der **Sprache** ist der Bescheid auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache erstellt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Der Bescheid ist auf der Grundlage einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache erstellt worden, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (gemäß Regeln 12.3 und 23.1 b)).

2. Hinsichtlich der **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz**, die in der internationalen Anmeldung offenbart wurde und für die beanspruchte Erfindung erforderlich ist, ist der Bescheid auf folgender Grundlage erstellt worden:

**a. Art des Materials**

☐ Sequenzprotokoll

☐ Tabelle(n) zum Sequenzprotokoll

**b. Form des Materials**

☐ in schriftlicher Form

☐ in computerlesbarer Form

**c. Zeitpunkt der Einreichung**

☐ in der eingereichten internationalen Anmeldung enthalten

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht

☐ bei der Behörde nachträglich für die Zwecke der Recherche eingereicht

3. ☐ Wurden mehr als eine Version oder Kopie eines Sequenzprotokolls und/oder einer dazugehörigen Tabelle eingereicht, so sind zusätzlich die erforderlichen Erklärungen, daß die Information in den nachgereichten oder zusätzlichen Kopien mit der Information in der Anmeldung in der eingereichten Fassung übereinstimmt bzw. nicht über sie hinausgeht, vorgelegt worden.

4. Zusätzliche Bemerkungen:

---

**Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Regel 43*b*/s.1(a)(i) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

---

**1. Feststellung**

Neuheit	Ja: Ansprüche 1-27 Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit	Ja: Ansprüche 1-27 Nein: Ansprüche
Gewerbliche Anwendbarkeit	Ja: Ansprüche: 1-27 Nein: Ansprüche:

**2. Unterlagen und Erklärungen:**

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V.**

- 1 Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:  
D1 : BURROWS P E ET AL: "Ultra barrier flexible substrates for flat panel displays"  
DISPLAYS ELSEVIER UK, Bd. 22, Nr. 2, Mai 2001 (2001-05),  
Seiten 65-69, XP002342349 ISSN: 0141-9382  
  
D2 : EP 0 815 283 B (EMPA EIDGENÖSSISCHE MATERIALPRÜFUNGS- UND  
FORSCHUNGSANSTALT; EIDGENO) 19. Juni 2002 (2002-06-19)
- 2 Das Dokument D1, wird als nächstliegender Stand der Technik angesehen. Es offenbart (siehe Kapitel 3 "Barix<sup>TM</sup> multi-layer coatings") ein Verfahren zur Herstellung eines Ultrabariere-Schichtsystems durch Vakuumbeschichtung eines Substrats, wobei ein Wechselschichtsystem aus Glättungsschichten und gesputterten, transparenten, keramischen ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) Schichten gebildet wird, und mindestens eine Glättungsschicht sich zwischen zwei keramischen Schichten befindet. Die Glättungsschichten werden erzeugt durch Vakuumaufdampfen von Acryl-Monomeren und anschließende Aushärtung zu Polymer-Schichten. Der Gegenstand des unabhängigen Anspruchs 1 unterscheidet sich hiervon dadurch, dass während der Abscheidung der Glättungsschicht ein Monomer in eine evakuierte Beschichtungskammer eingelassen wird, in der ein Magnetronplasma betrieben wird.
- 2.1 Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist somit neu (Artikel 33 (2) PCT). Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, ein Verfahren zur Herstellung eines transparenten Barrierschichtsystems anzugeben, wobei das Verfahren sowohl von der Beschichtungsgeschwindigkeit als auch von den Vakuumanforderungen mit dem Magnetronspotten kompatibel ist.
- 2.2 Die in Anspruch 1 der vorliegenden Anmeldung für diese Aufgabe vorgeschlagene Lösung beruht auf einer erfinderischen Tätigkeit (Artikel 33(3) PCT), da die Polymerisation von Monomeren zu Glättungsschichten mittels eines Magnetronplasmas nicht durch den Stand der Technik nahegelegt wird. Obwohl D2 (siehe Ansprüche 1-9) ein Verfahren offenbart, wobei Magnetronzerstäubung und

eine Plasmapolymersation gleichzeitig stattfinden, gehen die zwei Verfahrensschritte gemäß dem Anspruch 1 nicht aus diesem Dokument hervor.

- 2.3 Die Ansprüche 2-27 sind abhängig vom Anspruch 1 und erfüllen deshalb ebenfalls die Kriterien der Neuheit und der erfinderischen Tätigkeit.

# PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF RECEIPT OF RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

26. Jan. 2005

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

FRAUNHOFER-PATENTSTELLE FÜR DIE  
DEUTSCHE FORSCHUNG  
Leonrodstrasse 68  
80636 München  
Germany

Date of mailing (day/month/year) 10 January 2005 (10.01.2005)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 03F43485-FEP	International application No. PCT/EP2004/013258

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E. V. (for all designated States except US)  
CHARTON, Christoph et al (for US)

International filing date : 23 November 2004 (23.11.2004)

Priority date(s) claimed : 02 February 2004 (02.02.2004)

Date of receipt of the record copy by the International Bureau : 14 December 2004 (14.12.2004)

List of designated Offices :

AP : BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW

EA : AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM

EP : AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR

OA : BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG

National : AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 338.89.70	Authorized officer:  Thomas ROCHAIX (Fax 338 8970)  Telephone No. (41-22) 338 8897
--	--

## Continuation of Form PCT/IB/301

## NOTIFICATION OF RECEIPT OF RECORD COPY

Date of mailing (day/month/year) 10 January 2005 (10.01.2005)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 03F43485-FEP	International application No. PCT/EP2004/013258

**ATTENTION**

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase - see updated important information (as of April 2002)
- ☒ requirements regarding priority documents (if applicable)

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

**INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE**

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated on the cover sheet of this Notification by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by Articles 22 and 39 and the applicable national laws. In addition, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

The applicable time limit for entering the national phase will, subject to what is said in the following paragraph, be 30 MONTHS from the priority date, not only in respect of any elected Office if a demand for international preliminary examination is filed before the expiration of 19 months from the priority date (see Article 39(1)), but also in respect of any designated Office, in the absence of filing of such demand, where Article 22(1) as modified with effect from 1 April 2002 applies in respect of that designated Office. For further details, see PCT Gazette No. 44/2001 of 1 November 2001, pages 19926, 19932 and 19934, as well as the PCT Newsletter, October and November 2001 and February 2002 issues.

In practice, time limits other than the 30-month time limit will continue to apply, for various periods of time, in respect of certain designated or elected Offices. For regular updates on the applicable time limits (20, 21, 30 or 31 months, or other time limit), Office by Office, refer to the PCT Gazette ("Section IV" part published on a weekly basis), to the PCT Newsletter (on a monthly basis) and to the relevant National Chapters in Volume II of the PCT Applicant's Guide (the paper version of which is updated usually twice a year and the Internet version of which is updated usually on a weekly basis). Finally, a cumulative table of all applicable time limits for entering the national phase is available from WIPO's Internet site, via links from various pages the site including those of the Gazette, Newsletter and Guide, at <http://www.wipo.int/pct/en/index.html>.

Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in the PCT Applicant's Guide, Volume I/A, Chapter IX. Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination (at present, all PCT Contracting States are bound by Chapter II).

**REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS**

For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 16 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 16-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 16-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within the time limit which is reasonable under the circumstances (Rule 17.1(c)).

Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 16-month time limit (and all other PCT time limits) is the filing date of the earliest application whose priority is claimed (Article 2(x)(b)).

From the INTERNATIONAL BUREAU

**PCT**NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

FRAUNHOFER-PATENTSTELLE FÜR DIE DEUTSCHE  
FORSCHUNG  
Leonrodstrasse 68  
80636 München  
ALLEMAGNE

23. März 2005

Erl. ....

Date of mailing ( <i>day/month/year</i> ) 09 March 2005 (09.03.2005)		
Applicant's or agent's file reference 03F43485-FEP	IMPORTANT NOTIFICATION	
International application No. PCT/EP04/013258	International filing date ( <i>day/month/year</i> ) 23 November 2004 (23.11.2004)	
International publication date ( <i>day/month/year</i> )	Priority date ( <i>day/month/year</i> ) 02 February 2004 (02.02.2004)	
Applicant FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E. V. et al		

- By means of this Form, which replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents, the applicant is hereby notified of the date of receipt by the International Bureau of the priority document(s) relating to all earlier application(s) whose priority is claimed. Unless otherwise indicated by the letters "NR", in the right-hand column or by an asterisk appearing next to a date of receipt, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- (If applicable) The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which, on the date of mailing of this Form, had not yet been received by the International Bureau under Rule 17.1(a) or (b). Where, under Rule 17.1(a), the priority document must be submitted by the applicant to the receiving Office or the International Bureau, but the applicant fails to submit the priority document within the applicable time limit under that Rule, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- (If applicable) An asterisk (\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b) (the priority document was received after the time limit prescribed in Rule 17.1(a) or the request to prepare and transmit the priority document was submitted to the receiving Office after the applicable time limit under Rule 17.1(b)). Even though the priority document was not furnished in compliance with Rule 17.1(a) or (b), the International Bureau will nevertheless transmit a copy of the document to the designated Offices, for their consideration. In case such a copy is not accepted by the designated Office as the priority document, Rule 17.1(c) provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	Date of receipt of priority document
02 February 2004 (02.02.2004)	10 2004 005 313.8	DE	07 February 2005 (07.02.2005)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  Guillemot Marie-Christine
Facsimile No. +41 22 740 14 35	Facsimile No. +41 22 338 89 70 Telephone No. +41 22 338 9838



## PCT

SECOND AND SUPPLEMENTARY NOTICE  
INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION (TO DESIGNATED OFFICES  
WHICH APPLY THE 30 MONTH TIME  
LIMIT UNDER ARTICLE 22(1))

(PCT Rule 47.1(c))

To:

FRAUNHOFER-PATENTSTELLE FÜR DIE DEUTSCHE  
FORSCHUNG  
Leonrodstrasse 68  
80636 München  
ALLEMAGNE

EINGEGANGEN

19. Juni 2006

Erl. ....

Date of mailing (day/month/year)

08 June 2006 (08.06.2006)

Applicant's or agent's file reference  
03F43485-FEP

## IMPORTANT NOTICE

International application No.  
PCT/EP2004/013258International filing date (day/month/year)  
23 November 2004 (23.11.2004)Priority date (day/month/year)  
02 February 2004 (02.02.2004)

Applicant

FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E. V. et al

1. **ATTENTION:** For any designated Office(s), for which the time limit under Article 22(1), as in force from 1 April 2002 (30 months from the priority date), **does not apply**, please see Form PCT/AB/308 (First Notice) issued previously.
2. Notice is hereby given that the following designated Office(s), for which the time limit under Article 22(1), as in force from 1 April 2002, **does apply**, has/have requested that the communication of the international application, as provided for in Article 20, be effected under Rule 93bis.1. The International Bureau has effected that communication on the date indicated below:  
11 August 2005 (11.08.2005)

AU, AZ, BY, CN, CO, DZ, EP, HU, KG, KP, KR, MD, MK, MZ, NA, PG, RU, SY, TM, US

In accordance with Rule 47.1(c-bis)(i), those Offices will accept the present notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

3. The following designated Offices, for which the time limit under Article 22(1), as in force from 1 April 2002, **does apply**, have not requested, as at the time of mailing of the present notice, that the communication of the international application be effected under Rule 93bis.1:

AE, AG, AL, AM, AP, AT, BA, BB, BG, BR, BW, BZ, CA, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EA, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LV, MA, MG, MN, MW, MX, NI, NO, NZ, OA, OM, PH, PL, PT, RO, SC, SD, SG, SK, SL, TJ, TN, TR, TT, UA, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZW

In accordance with Rule 47.1(c-bis)(ii), those Offices accept the present notice as conclusive evidence that the Contracting State for which that Office acts as a designated Office does not require the furnishing, under Article 22, by the applicant of a copy of the international application.

## 4. TIME LIMITS for entry into the national phase

For the designated or elected Office(s) listed above, the applicable time limit for entering the national phase will, subject to what is said in the following paragraph, be **30 MONTHS** from the priority date.

In practice, time limits other than the 30-month time limit will continue to apply, for various periods of time, in respect of certain of the designated or elected Office(s) listed above. For regular updates on the applicable time limits (30 or 31 months, or other time limit), Office by Office, refer to the *PCT Gazette*, the *PCT Newsletter* and the *PCT Applicant's Guide*, Volume II, National Chapters, all available from WIPO's Internet site, at <http://www.wipo.int/pct/en/index.html>.

It is the applicant's sole responsibility to monitor all these time limits.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Agnes Wittmann-Regis

Facsimile No. +41 22 740 14 35

Facsimile No. +41 22 338 89 70

## PCT

FIRST NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF  
THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION (TO DESIGNATED OFFICES WHICH  
DO NOT APPLY THE 30 MONTH TIME LIMIT  
UNDER ARTICLE 22(1))

(PCT Rule 47.1(c))

To:

FRAUNHOFER-PATENTSTELLE FÜR DIE DEUTSCHE  
FORSCHUNG  
Leonrodstrasse 68  
80636 München  
ALLEMAGNE

EINGEGANGEN

1. Sep. 2005

Erl. ....

Date of mailing ( <i>day/month/year</i> ) 09 September 2005 (09.09.2005)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference 03F43485-FEP			
International application No. PCT/EP2004/013258	International filing date ( <i>day/month/year</i> ) 23 November 2004 (23.11.2004)	Priority date ( <i>day/month/year</i> ) 02 February 2004 (02.02.2004)	
Applicant FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E. V. et al			

1. ATTENTION: For any designated Office(s), for which the time limit under Article 22(1), as in force from 1 April 2002 (30 months from the priority date), does apply, please see Form PCT/IB/308(Second and Supplementary Notice) (to be issued promptly after the expiration of 28 months from the priority date).
2. Notice is hereby given that the following designated Office(s), for which the time limit under Article 22(1), as in force from 1 April 2002, does not apply, has/have requested that the communication of the international application, as provided for in Article 20, be effected under Rule 93bis.1. The International Bureau has effected that communication on the date indicated below:  
11 August 2005 (11.08.2005)

CH

In accordance with Rule 47.1(c-bis)(i), those Offices will accept the present notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

3. The following designated Offices, for which the time limit under Article 22(1), as in force from 1 April 2002, does not apply, have not requested, as at the time of mailing of the present notice, that the communication of the international application be effected under Rule 93bis.1:

LU, SE, TZ, UG, SM

In accordance with Rule 47.1(c-bis)(ii), those Offices accept the present notice as conclusive evidence that the Contracting State for which that Office acts as a designated Office does not require the furnishing, under Article 22, by the applicant of a copy of the international application.

4. TIME LIMITS for entry into the national phase

For the designated Office(s) listed above, and unless a demand for international preliminary examination has been filed before the expiration of 19 months from the priority date (see Article 39(1)), the applicable time limit for entering the national phase will, subject to what is said in the following paragraph, be 20 MONTHS from the priority date.

In practice, time limits other than the 20-month time limit will continue to apply, for various periods of time, in respect of certain of the designated Offices listed above. For regular updates on the applicable time limits (20 or 21 months, or other time limit), Office by Office, refer to the *PCT Gazette*, the *PCT Newsletter* and the *PCT Applicant's Guide*, Volume II, National Chapters, all available from WIPO's Internet site, at <http://www.wipo.int/pct/en/index.html>.

It is the applicant's sole responsibility to monitor all these time limits.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Agnes Wittmann-Regis

Facsimile No. +41 22 740 14 35

Facsimile No. +41 22 338 89 70